

# ATOMIC VAPORIZER ISOTOPE SEPARATION FOR 203 THALLIUM AND 210 LEAD ISOTOPES

**Patent number:** JP2000262866  
**Publication date:** 2000-09-26  
**Inventor:** SCHEIBNER KARL F; CHRISTOPHER A HEINAMU;  
 MICHAEL A JOHNSON; R F WORDON  
**Applicant:** US ENRICHMENT CORP  
**Classification:**  
 - international: B01D59/34; B01D59/50  
 - european: B01D59/34  
**Application number:** JP19990197363 19990712  
**Priority number(s):** US19990273229 19990318

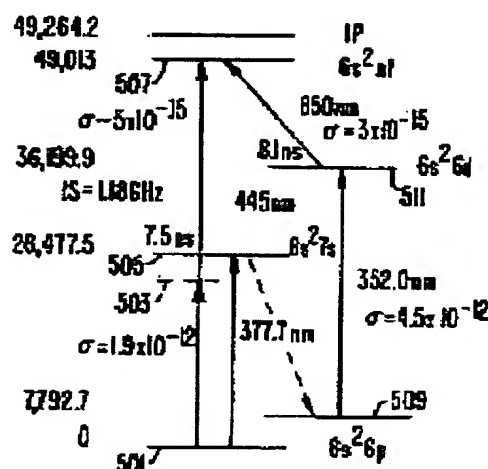
Also published as:

 FR2790974 (A1)

[Report a data error here](#)

## Abstract of JP2000262866

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obviate excess laser output and to improve economics by generating light of different frequencies and exciting numbers of  $^{203}\text{Tl}$  atoms in a ground state into an intermediate state close to resonance and a final Rydberg state when  $^{203}\text{Tl}$  atoms are separated from the vapor of thallium having numbers of isotopes. **SOLUTION:** When  $^{203}\text{Tl}$  atoms are separated from the vapor of thallium having numbers of isotopes, light of a prescribed frequency is generated, and a prescribed wavelength coinciding with the frequency is made to be about 377.7 nm. Next, light of another frequency is generated similarly, and another wavelength coinciding with the frequency is made to be about 433.7 nm. Subsequently, photons of both frequencies are injected into thallium vapor, numbers of  $^{203}\text{Tl}$  atoms in a ground state are excited into an intermediate state close to resonance by the photons of a prescribed frequency, and numbers of  $^{203}\text{Tl}$  atoms in the intermediate state are excited into a final Rydberg state by the photons of another frequency.



BEST AVAILABLE COPY

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2000-262866  
(P2000-262866A)

(43) 公開日 平成12年9月26日 (2000.9.26)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

B 0 1 D 59/34  
59/50

識別記号

F I

B 0 1 D 59/34  
59/50

テーマコード (参考)

B

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平11-197363

(22) 出願日 平成11年7月12日 (1999.7.12)

(31) 優先権主張番号 09/273229

(32) 優先日 平成11年3月18日 (1999.3.18)

(33) 優先権主張国 米国 (U S)

(71) 出願人 599034387

ユナイテッド ステーツ エンリッチメン  
ト コーポ レーション  
アメリカ合衆国、20817 メリーランド州、  
ベテ スダ、ロックレッジ ドライブ  
6903、ツー デモクラシー センター、フ  
ォース フロアー (番地なし)

(72) 発明者 カール エフ シェイプナー

アメリカ合衆国、95376 カリフォルニア  
州、トレイシー、ダブリュ グラント ラ  
イン ロード 16533

(74) 代理人 100065226

弁理士 朝日奈 宗太 (外1名)

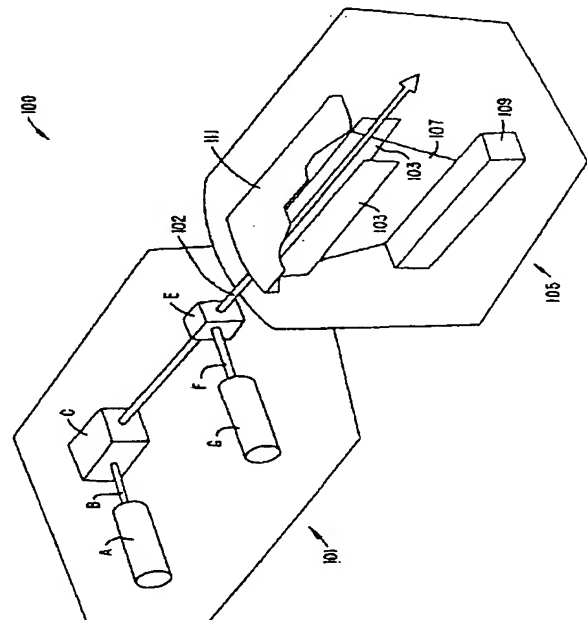
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】  $^{203}\text{Tl}$  および  $^{210}\text{Pb}$  同位体についてのアトミックベイパーレーザー同位体分離

(57) 【要約】

【課題】 余分なレーザー出力を必要とせず、経済的に実現可能な同位体分離方法を提供することである。

【解決手段】  $^{203}\text{Tl}$  を含む多数の同位体をもつタリウムの蒸気から  $^{203}\text{Tl}$  を分離する方法であって、レーザーのシステムによる第1の周波数の光を生成する工程であって、該第1の周波数に一致する第1の波長が、およそ377.7ナノメートルである第1の周波数の光を生成する工程と、レーザーのシステムによる第2の周波数の光を生成する工程であって、該第2の周波数に一致する第2の波長が、およそ443.7ナノメートルである工程と、前記第1および第2の周波数の光子を前記タリウムの蒸気に注入する第2の周波数の光を生成する工程であって、該第1の周波数の該光子が、多数の基底状態の多数の  $^{203}\text{Tl}$  を共鳴に近い状態である中間状態に励起させる工程と、該第2の周波数の該光子が、該共鳴に近い状態である中間状態の多数の該  $^{203}\text{Tl}$  を最終的なリユードベリ状態に励起させる工程と、前記同位体  $^{203}\text{Tl}$  とを集める工程とからなる方法から構成される。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】  $^{203}\text{Tl}$ を含む多数の同位体をもつタリウムの蒸気から $^{203}\text{Tl}$ を分離する方法であって、レーザーのシステムによる第1の周波数の光を生成する工程であって、該第1の周波数に一致する第1の波長が、およそ377.7ナノメートルである第1の周波数の光を生成する工程と、レーザーのシステムによる第2の周波数の光を生成する工程であって、該第2の周波数に一致する第2の波長が、およそ443.7ナノメートルである工程と、前記第1および第2の周波数の光子を前記タリウムの蒸気に注入する第2の周波数の光を生成する工程であって、該第1の周波数の該光子が、多数の基底状態の多数の $^{203}\text{Tl}$ を共鳴に近い状態である中間状態に励起させる工程と、該第2の周波数の該光子が、該共鳴に近い状態である中間状態の多数の $^{203}\text{Tl}$ を最終的なリユードベリ状態に励起させる工程と、前記同位体 $^{203}\text{Tl}$ とを集める工程とからなる方法。

【請求項2】 前記第1の周波数がおよそ1 GHz、 $^{203}\text{Tl}$ の共鳴から与えられる請求項1記載の方法。

【請求項3】 前記レーザーのシステムによる第3の周波数の光子を生成する工程であって、該第3の周波数の該光子を前記タリウムの蒸気に注入する工程であって、前記第1の前記光子が第1のFレベルの中の基底状態の $^{203}\text{Tl}$ の原子を利用する工程であって、該第3の周波数の該光子が第2のFレベルの中の基底状態の $^{203}\text{Tl}$ 原子を利用する工程からなる請求項1記載の方法。

【請求項4】 前記同位体 $^{203}\text{Tl}$ を集める工程が、さらに前記タリウムの蒸気に電界を加える工程からなる請求項1記載の方法。

【請求項5】 前記共鳴に近い中間状態が26477.5  $\text{cm}^{-1}$ 近くにあつて、前記最終的なリユードベリ状態が49000  $\text{cm}^{-1}$ 近くにある請求項1記載の方法。

【請求項6】  $^{203}\text{Tl}$ を含む多数の同位体をもつタリウムの蒸気から $^{203}\text{Tl}$ を分離する方法であって、レーザーのシステムによる第1の周波数の光を生成する工程であって、該第1の周波数に一致する第1の波長が、およそ377.7ナノメートルである第1の周波数の光を生成する工程と、レーザーのシステムによる第2の周波数の光を生成する工程であって、該第2の周波数に一致する第2の波長が、およそ352ナノメートルである第2の周波数の光を生成する工程と、レーザーのシステムによる第3の周波数の光を生成する工程であって、該第3の周波数に一致する第3の波長が、およそ850ナノメートルである第3の周波数の光を生成する工程と、前記第1の周波数の前記光子を前記タリウムの蒸気に注入する工程であって、該第1の周波数の該光子が、多数の基底状態の $^{203}\text{Tl}$ を共鳴に近い状態である中間状態に励起させる工程と、該共鳴に近い状態である中間状態の多数の $^{203}\text{Tl}$ の原子が準安定状態に放射性崩壊する工程と、前記第2の周波数の前記光子を前記タリウムの蒸

気に注入する工程であつて、該第2の周波数の該光子が、多数の前記準安定状態の $^{203}\text{Tl}$ を第2の準安定状態に励起させる工程と、前記第3の周波数の前記光子を前記タリウムの蒸気に注入する工程であつて、該第3の周波数の該光子が、多数の前記第2の準安定状態の $^{203}\text{Tl}$ を最終的なリユードベリ状態に励起させる工程と、前記同位体 $^{203}\text{Tl}$ を集める工程からなる方法。

【請求項7】 前記共鳴に近い状態である中間状態が26477.5  $\text{cm}^{-1}$ 近くにあつて、前記準安定状態が7792.7  $\text{cm}^{-1}$ 近くにあつて、前記共鳴に近い第2の中間状態が36199.9  $\text{cm}^{-1}$ 近くにあつて前記リユードベリ状態が49000  $\text{cm}^{-1}$ 近くにある請求項6記載の方法。

【請求項8】 前記同位体 $^{203}\text{Tl}$ を集める工程が、さらに前記タリウムの蒸気に電界を加える工程からなる請求項6記載の方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、同位体の分離に関する。さらに詳しくは、同位体的に選択的なレーザープロセスを用いる同位体分離に関する。

## 【0002】

【従来の技術】自然の状態では、タリウムは、 $^{203}\text{Tl}$ と $^{210}\text{Tl}$ の二つの安定な状態を含む。 $^{203}\text{Tl}$ の成分は、自然に存在するタリウムの30%からなる。95%以上の純度に $^{203}\text{Tl}$ が濃縮されたタリウムは、商業的に有用で、かつ $^{201}\text{Tl}$ の前駆物質として放射性医薬品の産業で使われている。心臓学 (cardiological) の結像 (imaging) および脳の結像に広く使われる $^{201}\text{Tl}$ は、サイクロトロンの中で濃縮された $^{203}\text{Tl}$ をプロトンボンバーディング (proton-bombarding) することによってつくられている。血液の流れに注入される $^{201}\text{Tl}$ は、優先的に心臓の筋肉に入り、電子捕獲によって崩壊し、167 keV (およびより低い) のガンマ線を生成する。そのガンマ線は、ハート・アタック (heart attack) のあとで、心臓のどの部分が適当な血液供給量をもっているかということを示すために像に映される。

【0003】自然のアンマイン (unmine) された状態では、 $^{210}\text{Pb}$ を含む多数の同位体を含む。 $^{210}\text{Pb}$ はおよそ22年の半減期の放射性である。結果として、古い世紀のアルトワ (artesian) 鉛は、相対的に若い自然の鉛と比較して、かなり低い $^{210}\text{Pb}$ の濃度をもつ。不幸なことに、アルトワの鉛に対する需要が増加するにつれて、アルトワの鉛の世界の供給量は、同時に消えつつある。一般に低濃度の $^{210}\text{Pb}$ を含む鉛の原則的な使用法の一つは、電子産業 (たとえば、はんだ) である。なぜならば、放射性的鉛によって放出されたアルファ粒子は、しばしば電気回路でのソフトエラー (soft error) を導く。加えて、電子産業がより高密度、減少させられた電圧を要求する三次元構成、およびフィーチャーサイズ

(featuresize)に進み、かつインターコネクトナンバー(interconnect number)および密度を増加させるつれて、アルファ粒子の感度は増加する。

【0004】アトミックベーパー(atomic vapor)レーザー同位体分離(AVLIS)システムは、ウラン、ガドリニウム、および他のランタノイドを含む多数の元素で実証されていた。たとえば、米国特許第5,202,005号明細書は、選択的な光イオン化による $^{157}\text{Gd}$ の同位体の濃縮化を示している。しかしながら、AVLISが特定の元素に対して技術的に実現可能であるかどうかは、フォトパスウェイ(photo-pathway)を含む問題点の広い多様性の詳細な考察、供給蒸気の流れのスペクトロスコープの調整、およびテイルリング(tailing)や供給のいずれかによる汚染から逃れた生成物の効果的な収集を要求する。AVLISの適用性の最も確実な評価は、同位体シフト、ハイパーファインスプリッティング(hyperfine splitting)、状態のエネルギー(state energy)、およびデジグネーション(designation)についての知識を要求する。AVLISが技術的に実現可能なばあいのこれらのケースに対して、経済的な評価は、この技術対他の分離方法が存在するばあいの技術、またはそれらが存在しないばあいの生成物との経済的な競争価格を決めることに従う。

【0005】これらの分析は、蒸気の性質の確定を導く物質の性質の知識と同様に、フォトパスウェイの知識、レーザーの数、出力、周波数および他の特徴の知識を要求する。ほとんどのフォトパスウェイは、典型的に、余分なレーザー出力を要求し、かつ経済的に実現可能な同位体分離プロセスを生じない。可能な変化への存在するレーザーの注意深い組み合わせもまた、経済的に考慮すべき要件である。

【0006】それゆえ、 $^{203}\text{Tl}$ および $^{210}\text{Pb}$ を分離するための経済的に効果的で、確かな方法が望まれる。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】従来のアトミックベーパーレーザー同位体分離では、ほとんどのフォトパスウェイは、典型的に、余分なレーザー出力を要求し、かつ経済的に実現可能な同位体分離方法を提供できなかったという問題点があった。本発明は、前記問題点を克服することを目的としたものである。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明の第1の態様は、 $^{203}\text{Tl}$ を含む多数の同位体をもつタリウムの蒸気から $^{203}\text{Tl}$ を分離する方法であって、レーザーのシステムによる第1の周波数の光を生成する工程であって、該第1の周波数に一致する第1の波長が、およそ377.7ナノメートルである第1の周波数の光を生成する工程と、レーザーのシステムによる第2の周波数の光を生成する工程であって、該第2の周波数に一致する第2の波長が、およそ443.7ナノメートルである第2の周波

数の光を生成する工程と、前記第1および第2の周波数の光子を前記タリウムの蒸気に注入する工程であって、該第1の周波数の該光子が、多数の基底状態の多数の $^{203}\text{Tl}$ を共鳴に近い状態である中間状態に励起させる工程と、該第2の周波数の該光子が、該共鳴に近い状態である中間状態の多数の該 $^{203}\text{Tl}$ を最終的なリユードベリ状態に励起させる工程と、前記同位体 $^{203}\text{Tl}$ とを集める工程とからなる方法である。

【0009】前記第1の周波数がおよそ1GHz、 $^{203}\text{Tl}$ の共鳴からそらされることが好ましい。

【0010】本発明の第2の態様は、 $^{203}\text{Tl}$ を含む多数の同位体をもつタリウムの蒸気から $^{203}\text{Tl}$ を分離する方法であって、レーザーのシステムによる第1の周波数の光を生成する工程であって、該第1の周波数に一致する第1の波長が、およそ377.7ナノメートルである第1の周波数の光を生成する工程と、レーザーのシステムによる第2の周波数の光を生成する工程であって、該第2の周波数に一致する第2の波長が、およそ352ナノメートルである第2の周波数の光を生成する工程と、レーザーのシステムによる第3の周波数の光を生成する工程であって、該第3の周波数に一致する第3の波長が、およそ850ナノメートルである第3の周波数の光を生成する工程と、前記第1の周波数の前記光子を前記タリウムの蒸気に注入する工程であって、該第1の周波数の該光子が、多数の基底状態の $^{203}\text{Tl}$ を共鳴に近い状態である中間状態に励起させる工程と、該共鳴に近い状態である中間状態の多数の該 $^{203}\text{Tl}$ の原子が準安定状態に放射性崩壊する工程と、前記第2の周波数の前記光子を前記タリウムの蒸気に注入する工程であって、該第2の周波数の該光子が、多数の前記準安定状態の $^{203}\text{Tl}$ を第2の準安定状態に励起させる工程と、前記第3の周波数の前記光子を前記タリウムの蒸気に注入する工程であって、該第3の周波数の該光子が、多数の前記第2の準安定状態の $^{203}\text{Tl}$ を最終的なリユードベリ状態に励起させる工程と、前記同位体 $^{203}\text{Tl}$ を集める工程とからなる方法である。

【0011】

【発明の実施の形態】 $^{210}\text{Pb}$ または $^{203}\text{Tl}$ のどちらかにレーザー同位体分離を適用するとき、いくつかの問題がある。 $^{203}\text{Tl}$ に対して、同位体シフトは、典型的な蒸気の膨張(vapor expansion)のドップラーのプロファイル(profile)に比較して小さい(すなわち、およそ1.66GHzである)。充分な量(すなわち、1時間あたり数グラム以上である)の材料を蒸発させるソースは、同様におよそ1-2GHzの結合されたドップラー幅(Doppler width)を伴う蒸気を生成する。それゆえ、ドップラー幅を限定するために、および $^{203}\text{Tl}$ のみを光イオン化するために正確に調製されたレーザーを設計するために、注意が払われなければならない。この技術をタリウムに適用することでの他の問題は、 $^{205}\text{Tl}$

1 に対して $^{203}\text{Tl}$ の間隔の詰まった周波数の近接 (frequency proximity) に帰因する。周波数の近接のために、誘導ラマン散乱 (stimulated Raman scattering) は、もし軽減されていないならば、選択的なイオン化効果 (selective ionization efficiency) およびより大きなレーザー出力要求を減らすことを導くと思われる。

【0012】レーザー同位体分離を用いて $^{210}\text{Pb}$ を分離することに関連する問題は、トリウムで出会うものとまったく同じである。 $^{207}\text{Pb}$ の $F=3/2$ の超微細要素は、 $^{210}\text{Pb}$ の最も近くにあり、かつおよそ23%、自然に多量にある。 $^{210}\text{Pb}$ と $^{207}\text{Pb}$ のあいだの遷移に対する同位体シフトは、およそ1GHzである。前述したように、二つの同位体のあいだ隔の詰まった周波数の近接のために、誘導ラマン散乱があるように思われる。関連した問題は、 $^{207}\text{Pb}$ が283ナノメートルで出力のかなりの量を吸収するということであり、このように潜在的なポンピング問題を生させる。

【0013】図1は、本発明のアトミック ベーパー (atomic vapor) レーザー同位体分離システム (AVLIS) 100を示す。レーザーのサブシステム101は、適当な波長の正確に調整され、かつ狭いバンド幅のレーザーの光102を生成する。例示したように、それぞれレーザーAおよびGで生成された二つの光のビームBおよびFは、1つの多重波長ビーム (multi-wavelength beam) 102を作るために光学エレメントCおよびEで合体する。しかしながら、本発明は、当業者に良く知られている、1つの多重波長ビームを達成する他の技術のように、この特定のレーザーのサブシステム101に限定されない。レーザーのサブシステム101によって放射されたレーザー光102は、セパレータのサブシステム105の中の二つの抽出装置103のあいだを通る。抽出装置103は、抽出装置のあいだを通るために、ソース109によって生成された超音速の蒸気の流れ (supersonic vapor stream) のよく照準が含まれた部分107を与えるだけのコリメーターサブシステム上に載せられている。レーザーのサブシステム101からの光のビーム102は、蒸気の流れ107を二分し、かつ抽出装置103によって、次に電界イオン化 (field-ionized) される高い位置にあるリュードベリレベルに、目的にかなうような同位体を選択的に占めさせる。目的にかなうような同位体がイオン化されたあとで、それは同じ抽出装置103によって蒸気の流れ107から静電学的に取り除かれる。この同位体の中でいま使い果たされた残っている蒸気の流れは、抽出装置103のあいだに続き、かつコレクターのサブシステム上で集められる。電極サブシステムは、垂れる (hang down) ことを要求され、目的にかなうような同位体イオンに関係する電子の電気的な通り道を与えるために、フォトゾーン (photozone) にちょうど接触する。

【0014】図2 (a) ~ (c) は、分離装置105の

動作の時間における三つ点を示す。前述したように、サブシステム105は、多重同位体 (multi-isotope) のソース109、蒸気の流れ107を含む領域201の向かい側に配置される1組の抽出装置の構造103、およびプロダクトコレクタ (product collector) 111を含んでいる。

【0015】時刻 $t_0$ のとき、ソース109は、文献で良く知られているプロセスに従って同位体の流れを生成する。(イオン化されていない) 原子は、原子の通り道を示す矢印203によって表されている。同位体が領域201に入ったあとで、レーザーの光 (示されていない) は、以下にさらに詳細に述べるプロセスに従い、 $^{203}\text{Tl}$ または $^{210}\text{Pb}$ のどちらかの同位体をリュードベリ状態 (Rydberg states) に励起する。抽出装置の構造103は、このステップのあいだ、電気的に中性か、または低い電圧状態 (<15V) に接地されている。

【0016】典型的に、 $t_0$ のあとのマイクロ秒のオーダーでの時刻 $t_1$ のとき、抽出装置の構造103は、負にチャージされている。抽出装置103と電界イオン化されたリュードベリ原子のあいだの続いて起こる引力は、適用に依存して、 $^{203}\text{Tl}$ または $^{210}\text{Pb}$ 原子のどちらかを、抽出装置の構造103の方向および抽出装置の構造103に引き寄せる。イオン化されていない原子の運動量は、なるべく、中性にチャージされたプロダクトコレクタの方向およびプロダクトコレクタに、それらをはこぶ。図2 (b) では、破線の矢印301は、イオンの通り道を示す。一方、矢印203は、イオン化されていない原子と装置105を通るそれらの通り道を示すために延びている。

【0017】図2 (c) で示すように、よりあとの時刻 $t_2$ では (バイプロダクト (bi-product) ( $^{203}\text{Tl}$ または $^{210}\text{Pb}$ 原子のどちらか) は、ずっと負にチャージされた抽出装置の構造103上に集まっていた。(装置105の中の示されていない電極は、領域201から自由電子を集める。))、一方、残っているもの (使い果たされたトリウム、または精製された鉛) は、プロダクトコレクタ111上に集められた。

【0018】含まれる二つのレーザーのうちのたったひとつ (ここでは、最初の) は、調整をかなり要求する。二つのプロセスの波長 (color)  $\lambda_1$  と  $\lambda_2$  は、それらの間隔の詰まった周波数の近接を利用するために、それぞれに関して伝わるカウンターである。この近接は、2光子 (two-photon) のドップラー幅 (Doppler width) を減少させる。単位バンド幅のフルエンスは、効果的なリュードベリの集団 (population) の利点の重要な特徴 (figure) であるので、つぎのこの幅の減少は、レーザーのフルエンスの必要条件を削減させ、かつ選択性を増加させる。アトミックベーパーのドップラーのプロファイルを広げるあいだに、低いドップラーのソース109が、周波数空間 (frequency space) の中で収束される

レーザーからの光を与えること、および小さな同位体シフトをもつこれらの要素に対する同位体分離を容易にすることに注目すべきである。最後に、共鳴の近くの中間状態のあらゆる実際の集団を避けることによって、短い寿命をもつレベルを占めることの困難さは避けられる。なぜならば、原子の集団のすべてが基底状態か、またはリユードベリ状態のどちらかになるからである。

#### 【0019】 $^{203}\text{Tl}$ の分離

本発明は、高い位置にある (high-lying) リユードベリ状態を利用する。このアプローチでは、原子が電界 (同位体的に選択されるプロセス) の不足でリユードベリのレベルに励起される。原子は、典型的に、およそ50マイクロ秒の放射遷移寿命をもつ。リユードベリのレベルの集団に続いて、原子は典型的に2 kV/cmのオーダーで、大きな電界にさらされる。加えられた電界の結果として、リユードベリ原子は、フィールドアイオナイゼーション (field ionization) と呼ばれるプロセスでイオン化される。

【0020】図3は、本発明によって精製されるタリウムに対する光イオン化の通り道を示す図である。示されているように、2光子の過程は、周波数 $\lambda_1$ の光子が基底状態501 (すなわち、 $^2P_{1/2}$ ,  $6s^26p$ である) から中間状態503にタリウムを励起することに使われる。状態503は、基底状態505の上の26,477.5  $\text{cm}^{-1}$ の共鳴状態505 (すなわち、 $^2S_{1/2}$ ,  $6s^27s$ である) の近くにある。377.7ナノメートルのレーザー遷移 (laser transition) 波長 $\lambda_{RS}$ は、共鳴状態505に達することが要求される。それゆえ、 $\lambda_2$ は $^{203}\text{Tl}$ に関して1 GHzだけ、およびこのように $^{205}\text{Tl}$ に関して2.66 GHzだけ $\lambda_{RS}$ から分かれる。

【0021】状態503の充分な集団は、周波数 $\lambda_1$ の光子が基底状態から中間状態503へ励起させ、かつ周波数 $\lambda_2$ の光子が直接的に中間状態503の原子を最終的なリユードベリ状態507に励起させるような本発明の直接的なプロセスである2段階ステップで維持されない。この実施の形態では、リユードベリレベル507は、49,013  $\text{cm}^{-1}$ では、50マイクロ秒の寿命をもち、 $5 \times 10^{-15}$ の吸収断面積をもつ。リユードベリレベルの選択は、寿命と吸収断面積のあいだの交換である。寿命が増えるにつれて、その断面積は小さくなる。より小さな断面積は、大きなレーザーの出力を要求する。一方、より短い寿命は、リユードベリ原子のフィールドがイオン化される前により多くの集団が放射性崩壊 (radiatively decaying) することを意味する。この実施の形態では、 $\lambda_1$ と $\lambda_2$ の波長は、それぞれ377.7ナノメートルと443.7ナノメートルである。

【0022】参照された実施の形態では、 $\lambda_1$ と $\lambda_2$ は、3つの因子によってドップラー幅を減少させること、およびそのプロセスの選択性を大幅に増大させることによ

って、反対に増加する (counter-propagated)。2光子の同位体シフトは1,18 GHzであると測定された。この実施の形態の他の利点は、共鳴を分離することによって、準安定状態509への $^{205}\text{Tl}$ の遷移確率が60%以上減少させられるということである。加えて、 $^{205}\text{Tl}$ は、2光子のステップのあいだ、共鳴の外にいて、その過程はとて選別的である。

【0023】この実施の形態の他の利点は、たった2つのレーザーのみが要求され、そしてそれらの一つのみがドップラーのプロファイルをカバーするために調整されるということである。このように、 $\lambda_1$ を生成する低い出力のレーザーが、調整される必要がある。そのうえ、中間状態のみが共鳴の近くにあり、かつ実際の集団は変化しないので、 $\lambda_1$ を生成するレーザーは、フィールドアイオナイゼーションの前に、利用されるFレベルでの基底状態の集団のすべてをリユードベリレベルに変えるために働く。

【0024】本発明の参照された実施の形態において、補助的なレーザーは、 $F=0$ と $F=1$ の両方の基底状態の微細構造レベルを利用することを認めること、および $F=1$ の中間レベルを通して、共鳴近くに、それらのレベルにエネルギーを与えることによって、 $\lambda_1$ のレーザーの波長の近くに一致する波長を生成することに使われる。前述した実施の形態のように、1つの $\lambda_2$ の波長のみが、基底状態の集団のすべてを利用するために要求される。この遷移を最大値にもってゆくために、および励起されたリユードベリ状態に集団のすべてを効果的に引き上げるために $\lambda_2$ を生成するレーザーは、少なくとも20ワットを発生させなければならない。

【0025】リユードベリレベル507の断面積およびラインワイズ (linewidth) は、電界の関数として測定される。緩く結合した (loosey-bound) リユードベリ電子は、主量子数  $n$  によって特徴づけられるようなリユードベリのレベルと関係する他の各運動量のサブレベルのすべてを混合する、外部の電界によって強く影響される。最後のイオン化は、リユードベリ原子に強い電界を加えることによってなされるので、測定は、どのくらいの電界の低さが、レーザーの出力の最小値でそのレベルを効果的に占めるのに要求されるかに関してなされる。この最大残差外部電界 (maximum residual external electric field) は、10 V/cm以下であると測定された。イオン化プロセスは、ここで選択された特定のリユードベリのレベルに対して2.5 kV/cmにより大きくなる外部のフィールドを要求する。それゆえ、高電圧では、ほんの少ししか存在しないリユードベリレベルを効果的に占めるために、抽出装置は、10 V/cm以下から2.5 kV/cmより大きいところまで、エネルギーを与えられなければならない。抽出装置は、レーザーのオフサイクル (off-cycle) で同期的にエネルギーを与えられる。

【0026】本発明の少なくとも一つの実施の形態では、レーザーのサブシステム101は、5から30kHzのあいだのパルスの繰り返し周波数(pulse repetition frequency)をつくることができる。レーザーのサブシステム101は、なるべく、パルスを出す増幅器の設計(pulsed amplifier design)である、マスター振動子にもとづいている。それぞれのレーザーのマスター振動子は、要求される波長で、ダイオードレーザーによって供給される、注入される連続的な波のシード(seed)のレーザーをもつタン・サファイア結晶からなる。少なくとも一つの実施の形態では、およそ50ミリワットが使われる。そのマスター振動子はまた、好まれる実施の形態の中の二つである、パルスドフリクエンシーダブルド(pulsed frequency-doubled)Nd:YAGレーザーによってエネルギーが与えられる。

【0027】他の実施の形態では、低出力のレーザーは、光学的に基底状態501から最初の励起状態505ヘトリウム原子にエネルギーを与える。前述したように、377.7ナノメートルのレーザー遷移波長 $\lambda_{RS}$ は、共鳴状態505に達するために要求される。状態505での原子は、ほぼ等しい確率で、基底状態501と準安定状態509(すなわち $^2P_{3/2}$ ,  $6s^26p$ である)の両方に放射性崩壊することが知られている。基底状態にある原子に連続的にエネルギーを与えることによって、集団のすべてが、準安定状態509に変えられることができる。準安定状態509から高い位置にあるリユードベリ状態を占めるためのいくつかの同位体的に選択的な2ステップの通り道が存在する。

【0028】技術的にも経済的にも、両方とも実現可能なくつかの2ステップの通り道があるけれども、考えられなければならないいくつかの要因がある。最初に、望まれるような年ごとに、濃縮されたトリウムの大量の(multiple)キログラムを生成するために、トリウムの蒸気の1時間あたりのグラム数が要求される。この蒸気の量に係るドップラー幅は1-2GHzである。一方、最初の遷移に対する同位体シフトは1.66GHzのみである。第2に、その遷移が $^{203}\text{Tl}$ に対して共鳴であるとき、 $^{205}\text{Tl}$ は1.66GHzの同位体シフトによって共鳴の外になる。結果として、より低割合ではあるが、 $^{205}\text{Tl}$ は同じ遷移を経るであろうというゼロではない確率がある。しかしながら、この割合は、 $\lambda_{RS}$ を生成するレーザーの出力に比例する。その遷移を最大値にもって行くために要求されるよりも、さらに大きなレーザーの出力が、 $^{203}\text{Tl}$ の吸収によって消費されるので、たぶん $^{205}\text{Tl}$ のかなりの部分が同じ遷移を経るだろう。結果として、準安定状態の集団は、同位体的に選択的ではなくなると思われる。そしてただ $^{203}\text{Tl}$ が吸収していただけよりも、かなり多くの $\lambda_{RS}$ のレーザー出力が要求されるであろう。

【0029】準安定状態209の集団での同位体選択性

の欠如は、準安定状態からのリユードベリレベルの同位体的に選択的な集団によって乗り越えられることができる。なるべくこの実施の形態では、2ステップ目は、準安定状態509と( $^2D_{3/2}$ ,  $6s^26d$ )または( $^2D_{5/2}$ ,  $6s^26d$ )のどちらかの状態511のあいだである。この遷移に要求されるレーザーの波長は、352.0ナノメートルである。遷移断面積は $4.5 \times 10^{-12}$ である。この遷移はまた、2GHz以下の相対的に小さい同位体シフトをもつ。状態511とリユードベリのレベル507のあいだの最終的な遷移は、850ナノメートルの波長および20ワットの関連するレーザーの出力を要求する。このように、本発明のこの実施の形態は、およそ、377.7ナノメートルで1ワット、352.0ナノメートルで1ワット、および850ナノメートルで20ワットの関連する出力および波長に3つのプロセスレーザーを要求する。

【0030】 $^{210}\text{Pb}$ 分離

図4は、 $^{210}\text{Pb}$ のレーザー同位体分離に対して利用される光選択的(photo-selective)な通り道の図である。示されているように、2光子のプロセスが使われる。その中では、周波数 $\lambda_1$ の光子が基底状態601(すなわち、 $6S^26p^2$ 状態である)から中間状態603に $^{210}\text{Pb}$ 原子を励起させる。状態603は、共鳴状態605(たとえば、 $6S^26p^27s$ )の近くにある。それから、状態603の原子は、周波数 $\lambda_2$ の二番目の光子によって最終的なリユードベリ状態607(すなわち、 $n \geq 19$ であるばあい、 $6s^26pn^2$ である)に励起させられる。当業者によって理解されるように、状態607では、原子の電子は実際的に自由ではない。すなわち、原子は、 $59819\text{cm}^{-1}$ でイオン化ポテンシャル上で連続ではない。むしろ、原子は電子が占める高いシェル(すなわち、 $n \geq 19$ である)のために効果的にイオン化される。 $^{210}\text{Pb}$ の分離に適用されるような本発明の選ばれる実施の形態では、周波数 $\lambda_1$ は、283ナノメートルまでの周波数であり、一方、周波数 $\lambda_2$ はおよそ412ナノメートルである。

【0031】図4で示される2光子のアプローチは、いくつかの目的を達成する。最初に、中間状態603が共鳴状態605から外れているので、誘導ラマン散乱(すなわち、SRSである)は十分に避けられる。鉛では、ラマン効果(すなわち、ラマン散乱にもとづく非弾性の光の散乱である)は、主に $^{207}\text{Pb}$ の $F=3/2$ の超微細の成分に帰因する。とくに、SRSの増加係数(gain coefficient)は、最初の励起状態603が状態605から共鳴の外に押し出される量の二乗で減少する。それゆえ、2光子プロセスを利用することによって(その中では、最初の励起された状態は、共鳴の外(off-resonance)にある)、ラマン効果は効果的に抑えられる。反対に、もし最初の励起状態が共鳴遷移(resonant transition)であるならば、インシデントレーザープロセッ



シング (incident laser processing) 放射の潜在的にかなりの部分が、ラマン遷移 (Raman transition) に与えられる。本発明のアプローチは、 $^{210}\text{Pb}$  に対する共鳴上に (on-resonance) のみある。それゆえ、本発明の2光子のアプローチにおける二番目の利点は、 $^{207}\text{Pb}$  による最初の遷移プロセス放射 (transition process radiation) (すなわち、周波数  $\lambda_1$  の放射である) の直接的な吸収が、最小化されることである。なぜならば、それは共鳴の外にあるからである。加えて、 $^{207}\text{Pb}$  は両方のステップで共鳴の外にあるので、 $^{207}\text{Pb}$  の吸収はよりさらに減少される。

【0032】本発明のプロセスの共鳴の外の (off-resonant) 性質についての三番目の利点は、もしすべてを合わせて避けられないならば、増幅された自発的な放射が十分に減少させられることができることである。増幅された自発的な放射の取り消し (avoidance) が望ましい。なぜならば、この効果はすべての同位体分離プロセスの効果を減少させてしまうからである。

【0033】それゆえ、状態605から離れた最初の励起状態603へ共鳴の外に置くことによって、この効果は最小化されることができる。このレーザー励起 (laser excitation) のプロセスは、誘導ラマン散乱および $^{207}\text{Pb}$  の光吸収に打ち勝つ。それは、大きなSR S増加係数へと部分的に導く大きな最初の励起状態の断面積を利用する。そのプロセスは、大きく共鳴の外に置くことに対してさえ控えめなレーザーフルエンスのみを要求する。実際の集団は共鳴近くの間レベルに変えられる。

【0034】そのプロセスは、最初のステップを共鳴の外 (off-resonance) に調整し、かつ第2のステップで共鳴の外に置くことを保証する。すぐ近くの $^{207}\text{Pb}$  の  $F=3/2$  の超微細の成分に帰因する誘導ラマン gain は、共鳴の外に置くことによってしきい値以下に保たれる。SR S増加係数は、detuningの二乗によって減少するので、これは効果的にSR Sの増加を抑制する。共鳴遷移は、ラマン遷移へ与えられるプロセスライト (process light) に帰着する。

【0035】このように、同位体ストリッピング (stripping) は、鉛の効果的な同位体的な精製 (isotopic purification) を促進する、蒸気を繰り返し照らす。選択されない鉛か中性のコレクターに集まるまえに、ストリッピングは、原子の蒸気を多数の連続的なイルミネーション領域201の影響下に置く。ストリッピングは、AVLSシステムの処理量および有効性を増加させ、一方、要求されるレーザー出力およびインターステージプロセス (interstage processing) を減少させ

る。そのうえ、 $\lambda_1$  のビーム (vis-a-vis the  $\lambda_2$  beam) の繰り返される注入は、パワースプレディング (power broadening) を減少させ、かつAVLSシステム100の選択性を増加させる。

【0036】表面 (たとえば、タリウムおよび鉛) に当たったとき、顕著な反射確率 (reflection probability) をもつ元素を分離するAVLSシステムに対して、ハイサーフェスコリメータデザイン (high surface collimator design) は、非選択的なピックアップを減少させ、システムの処理量を増加させ、かつ濃縮された流れの純度を増加させる。

【0037】当業者に理解されるように、本発明は、本発明の精神または本質的な特徴から逸脱することなく他の特定の形態に具体化されるかもしれない。したがって、本明細書の開示および記載は、説明するために意図されたのであり、添付の特許請求の範囲に述べられた本発明の範囲の限定をするものではない。

【0038】

【発明の効果】以上のように、請求項1の発明によれば、より選択的に同位体を分離できる。

【0039】また請求項2の発明によれば、準安定状態への $^{205}\text{Tl}$  の遷移確率が60%以上減少する。加えて、 $^{205}\text{Tl}$  は、2光子ステップのあいだ、共鳴の外にいたので、より選択的に同位体を分離できる。

【0040】また請求項3の発明によれば、第2のFレベルの $^{203}\text{Tl}$  を利用することができ、より効率的に同位体を分離することができる。

【0041】また、請求項4～8の発明によれば、より選択的に同位体を分離できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明によるアトミックベイパーレーザー同位体分離システムを示す図である。

【図2】(a) は時刻  $t_0$  における本発明の同位体分離装置の作動をし、(b) は時刻  $t_1$  における本発明の同位体分離装置の作動をし、(c) は時刻  $t_2$  における本発明の同位体分離装置の作動をそれぞれ示す図である。

【図3】タリウムに対する光イオン化の道筋を示す図である。

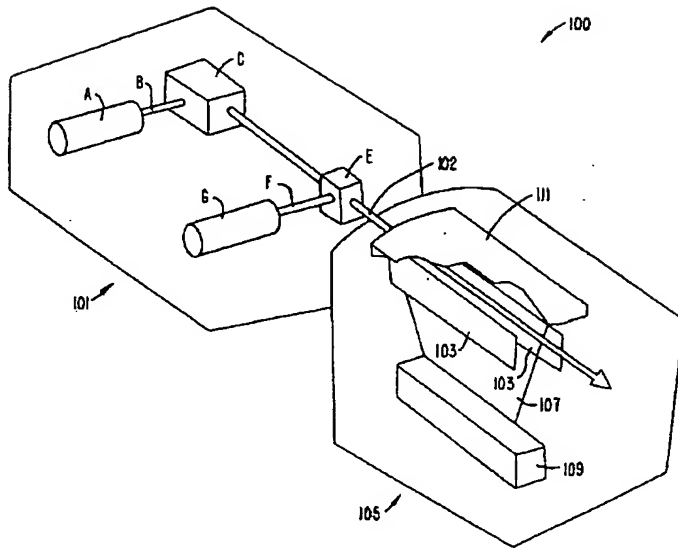
【図4】鉛に対する光イオン化の道筋を示す図である。

【符号の説明】

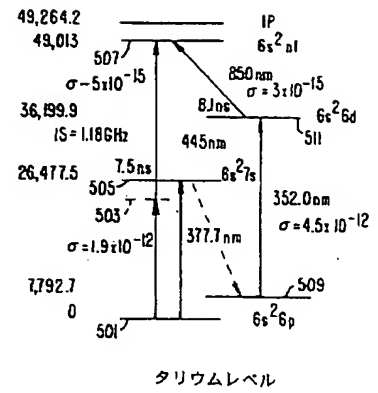
- 100 レーザー同位体分離システム
- 101 レーザーのサブシステム
- 102 レーザー光
- 103 抽出装置
- 105 セパレータのサブシステム
- 109 ソース



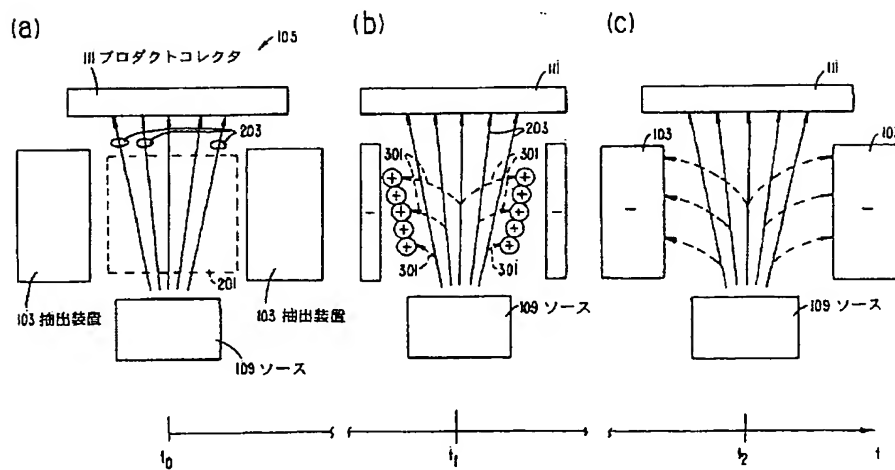
【図1】



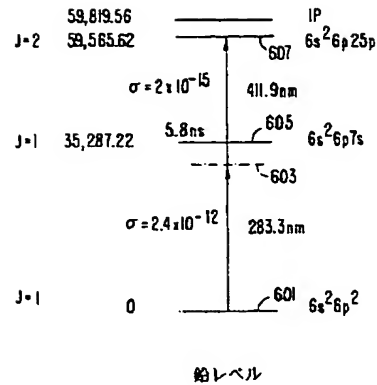
【図3】



【図2】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 クリストファー エイ ヘイナム  
アメリカ合衆国、94588 カリフォルニア  
州、プレゼントン、ファーンデイル 3035

(72)発明者 マイクル エイ ジョンスン  
アメリカ合衆国、94588 カリフォルニア  
州、プレゼントン、フィンレイ ロード  
1100

(72)発明者 アール エフ ワードン  
アメリカ合衆国、94528 カリフォルニア  
州、ディアブロ、ヴェレダ デル シエル  
ヴォ 117

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**